

Development of Heusler-alloy-based Current-Perpendicular-to-Plane Giant Magnetoresistive Devices

著者	CHEN Jiamin
発行年	2017
その他のタイトル	ホイスラー合金を使った面直電流磁気抵抗素子の開発
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2017
報告番号	12102甲第8411号
URL	http://hdl.handle.net/2241/00152735

氏 名	陳 嘉民
学 位 の 種 類	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 8 4 1 1 号
学位授与年月日	平成 2 9 年 1 2 月 3 1 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審 査 研 究 科	数理解物質科学研究科
学 位 論 文 題 目	Development of Heusler-alloy-based Current-Perpendicular-to-Plane Giant Magnetoresistive Devices (ホイスラー合金を使った面直電流磁気抵抗素子の開発)

主査	筑波大学	教授 (連係大学院)	Ph. D.	宝野和博
副査	筑波大学	教授 (連係大学院)	博士 (工学)	三谷誠司
副査	筑波大学	教授	理学博士	黒田眞司
副査	筑波大学	教授	博士 (工学)	柳原英人

論文の要旨

審査対象論文は、スピン分極率の高いCo基ホイスラー合金を強磁性層、Agをスペーサ層として用いた面直電流磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子の高出力化と実用化素子展開への基盤技術確立を目的とした研究成果をまとめたもので、MR特性の結晶方位依存性の実験的検証、新規ホイスラー合金探索、Si基板上へのエピタキシャル素子成長、それを多結晶電極に接合させるプロセス技術に関する系統的な研究結果を報告している。ホイスラー合金を用いたCPP-GMRは次世代の超高密度ハードディスク用の再生ヘッド用磁気センサー等への応用が期待されているが、そのためには多結晶デバイスで想定される(011)配向した多層膜での高いMR比の実現や、低温熱処理でL2₁構造に規則化し高いスピン分極率を示す強磁性ホイスラー合金の開発、高温熱処理を可能とするデバイス作製法の新プロセス開発など、多くの問題が残されている。そこで本研究では、(1) CPP-GMR特性がホイスラー合金層とスペーサ界面の結晶方位に依存するかどうかの実験検証、(2) 低温熱処理によりL2₁規則化が進行し高いスピン分極率を発現する新規ホイスラー合金の探索、(3) 高温熱処理が可能なホイスラー合金単結晶素子をSiウェーハーに成長させる最適なバッファ層の開発、(3) Siウェーファー上の単結晶素子を多結晶電極に接合させて高磁気抵抗出力を維持するプロセス法の開発を行った。

第1章は、CPP-GMRの基礎とCo基ホイスラー合金を用いたCPP-GMRに関する文献をまとめ、本研究の背景と課題を述べている。第2章は本研究で用いた薄膜作製法と微細加工法の説明に加え、試料ならびに素子の評価法の概要が述べられている。第3章では、CPP-GMRの強磁性層とスペーサ層の結晶方位関係が磁気伝導特性に及ぼす影響を検討した結果を報告している。実用多結晶素子で使われている(011)配向の多結晶ホイスラー合金CPP-GMR素子のMR出力は、多くの研究例のある(001)単結晶素

子に比べて著しく低い、この一因がホイスラー合金強磁性相とAgスペーサ間の結晶方位による格子不整合ならびにバンドマッチングの違いではないかという仮説を立てた。それを検証するために、 $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$ ホイスラー合金（以降CFGG）を用いたCFGG/Ag/CFGGのCPP-GMR 3層構造を $(11\bar{2}0)$ サファイア基板上に成長させることにより、 $(110)[001]_{\text{CFGG}}// (111)[1\bar{1}0]_{\text{Ag}}$ の方位関係実現し、それを従来の $(001)\text{MgO}$ 単結晶基板に成長させた $(001)[110]_{\text{CFGG}}// (001)[010]_{\text{Ag}}$ と比較した。その結果、 $(110)[001]_{\text{CFGG}}// (111)[1\bar{1}0]_{\text{Ag}}$ の方位関係を持つ単結晶素子は界面で大きな格子不整合が生じるために、CPP-GMR出力が $(001)[110]_{\text{CFGG}}// (001)[010]_{\text{Ag}}$ 素子よりも著しく小さくなることが実証された。一方スペーサ層をfcc構造のAgからホイスラー合金と対称性の同じB2構造のNiAlを使った場合に、これらの結晶方位によらず格子不整合が発生しないため、いずれの方位関係でもMR出力が変化しないことが示された。これは界面の格子不整合が結晶方位に依存する場合、それが磁気伝導特性に大きな影響を与えることを示している。第4章は現在報告されているホイスラー合金強磁性層を用いたCPP-GMRよりもさらに高いMR比の実現を目指し、従来よりも低い熱処理温度でL₂構造に変態するホイスラー合金薄膜の探索研究を行った。L₂構造を持つ Co_2FeSi はキュリー点の最も高いホイスラー合金系ハーフメタルと理論予測されているものの、通常L₂構造への規則化が高温でも進行せず、そのスピン分極率も低い。第一原理計算によりFeをTiで置換した $\text{Co}_2(\text{Fe}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{Si}$ 合金はL₂変態への駆動力が高いと予測されたので、 $\text{Co}_2(\text{Fe}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{Si}$ ($0 \leq x \leq 0.6$)の薄膜を作製し、それらを650°Cまで熱処理した薄膜試料の構造ならびに異方性磁気抵抗測定(AMR)を行った。その結果 $x=0.2$ の合金薄膜でL₂規則化が400°Cという比較的低温で起こり、AMRの符号とその値から、 $\text{Co}_2(\text{Fe}_{0.8}\text{Ti}_{0.2})\text{Si}$ （以降CFTS）薄膜がハーフメタル性を示すことが見出された。ところが、このCFTS合金薄膜をCPP-GMR電極として用いても、MR効果はほとんど観察されなかった。素子の電子顕微鏡観察の結果、CFTS/Ag/CFTS 3層膜は熱処理によりCFTS層とAg層が合金化し、多層構造が破壊されてしまうことが分かった。このためCPP-GMR素子ではCFTSのスピン分極率の評価が出来ないので、CFTS/Cuの非局所スピンバルブ素子を用いてスピン分極率評価を行ったところ、 Co_2FeSi のスピン分極率が $P=0.61$ であったものが、CFTSでは $P=0.7$ まで促進されることが分かった。ホイスラー合金で高いスピン分極率を得るためには薄膜を400°C以上でアニールする必要があるが、実用的な多結晶素子でこのような高温熱処理を行うと多結晶膜が再結晶して多層構造が破壊してしまうという問題があった。一方、多くの実験室的研究で使われてきた $(001)\text{MgO}$ 単結晶基板は高価かつ8"ウェーハーがないために産業応用に適しない。この問題を解決する一つの方法として、第5章ではホイスラー合金を使った単結晶CPP-GMR素子をSiウェーファー上に成長させる方法を提案した。熱酸化Si基板をフッ酸処理し、超高真空中熱処理で清浄表面を得た後にB2構造のNiAl層をバッファ層として成長させる。これはSi基板とエピタキシャル成長し、 (001) 面が成長する。その上にFeCo拡散バリア層、Agバッファを成長させ、その後 $(001)[110]_{\text{CFGG}}// (001)[010]_{\text{Ag}}$ の方位関係をもつCFGG/Ag/CFGG 3層膜を成長させることに成功した。またこれをデバイス応用するためには多結晶電極に接合する必要がある。第6章ではウェーハーボンディング法を適応することにより、多結晶基板にCFGG/Ag/CFGG 3層構造を接合させ、そのCPP-GMR特性がボンディング前から変化しないことを実証した結果が報告されている。第7章は本論文のまとめと研究についての今後の展望を述べている。

〔批評〕

本論文は次世代高密度ハードディスクドライブの再生ヘッド用磁気センサー等への応用が期待されているホイスラー合金強磁性層を用いた **CPP-GMR** における技術課題に対して、4つの新しい実験的アプローチを行い、実用化を阻む問題の解決方法を提案した。一つは、多結晶 **CPP-GMR** でホイスラー合金の成長面が(011)面になるのに対し、多くの基礎研究では (001)単結晶膜が使われて来たが、それが磁気伝導効果に与える影響を世界で初めて示した。応用上は(011)面配向した多結晶膜が使われるので、その影響を初めて実験適に示した本研究は、ホイスラー合金 **CPP-GMR** 素子応用上、非常に重要な知見である。また Co_2FeSi の Fe を一部 Ti で置換した **CFTS** がより低温で L_2 規則化し、スピン分極率も **CFS** より高いことを実験的に示した研究は、今後の高スピン分極率ホイスラー合金探索のための手法として文献価値が高い。**CFTS** 薄膜のスピン分極率を評価するために、非局所スピンバルブ構造を作製し、その磁気伝導特性を測定することにより **CFTS** のスピン分極率測定を行った。これは実験的にも非常に高い水準の研究であり、今後新規強磁性材料の分極率測定法として広く用いられることになると予測される。また、多くの基礎研究に使われて来た **MgO** 基板上に成長させた単結晶 **CPP-GMR** 素子は **MgO** の高価格と 8”ウェーハーへの非拡張性から応用の可能性は全くないが、この問題を回避するために安価な **Si** ウェーハー上にホイスラー合金単結晶 **CPP-GMR** 素子を成長させるためのバッファ層 **B2-NiAl** と拡散バリアの **FeCo** 層を開発し、高い **CPP-GMR** 効果を示す(001)単結晶デバイスを **Si** 基板上に成長させることに成功した。またこの単結晶素子のセンサーへの応用を想定して、多結晶電極にウェーハー接合させる手法も実証した。これらはホイスラー合金 **CPP-GMR** 素子のセンサー応用に極めて重要な知見を与える工学的研究であると高く評価される。

〔最終試験結果〕

平成29年11月21日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。